

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第12条、法施行規則第56条)

[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 30 JUN 2005

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 NE-70154W0	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP2004/001795	国際出願日 (日.月.年) 18.02.2004	優先日 (日.月.年) 18.02.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. ⁷ H01M 4/86, 4/88, 8/02, 8/10		
出願人 (氏名又は名称) 日本電気株式会社		

- この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
- この報告には次の附属物件も添付されている。
 - ☒ 附属書類は全部で 9 ページである。
 - ☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)
 - ☐ 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙
 - ☐ 電子媒体は全部で _____ (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。(実施細則第802号参照)
- この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
 - ☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎
 - ☐ 第II欄 優先権
 - ☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
 - ☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如
 - ☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
 - ☐ 第VI欄 ある種の引用文献
 - ☐ 第VII欄 国際出願の不備
 - ☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 16.12.2004	国際予備審査報告を作成した日 14.06.2005		
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 守安 太郎	4X	9347
		電話番号 03-3581-1101 内線 3477	

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、_____ 語による翻訳文を基礎とした。
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査
☐ PCT規則12.4にいう国際公開
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-3, 7, 8, 10-28 _____ ページ、出願時に提出されたもの
 第 4, 4/1, 5, 6, 9 _____ ページ*, 16.12.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2, 9, 13, 16, 17, 20-22 _____ 項、出願時に提出されたもの
 第 _____ 項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 第 6-8, 10-12, 14, 15, 19, 23-28 _____ 項*, 16.12.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ 項*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1/4-4/4 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 1, 3-5, 18 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表(具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表(具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 7-9, 11-17, 23-28	有
	請求の範囲 2, 6, 10, 19-22	無
進歩性 (IS)	請求の範囲 9, 14, 24, 27	有
	請求の範囲 2, 6-8, 10-13, 15-17, 19-23, 25, 26, 28	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 2, 6-17, 19-28	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

文献1: JP 62-196389 A (ザ ダウ ケミカル カンパニー)
1987.08.29, 第3頁右下欄第17行—第4頁左上欄第7行,
第6頁左下欄第20行—同頁右下欄第19行, 図面

文献2: JP 5-325983 A (三菱電機株式会社)
1993.12.10, 段落 0010, 段落 0015, 図1, 図2

文献3: JP 7-326363 A (三洋電機株式会社)
1995.12.12, 段落 0021, 段落 0030, 図1

文献4: JP 7-57742 A (田中貴金属工業株式会社)
1995.03.03, 段落 0004, 段落 0005

文献5: JP 2001-329380 A (株式会社フルヤ金属) 2001.11.27,
段落 0022, 段落 0024, 段落 0028, 段落 0033-0035, 図3

請求の範囲 2, 6, 19-22

請求の範囲 2, 6, 19-22 に記載された発明は、新たに引用された文献5から新規性を有さない。多孔質金属シートの表面を粗面化することは、文献5の段落 0028 に開示され、また、多孔質金属シートの表面をエッチングすることは文献5の段落 0024 に開示されている。

請求の範囲 10

請求の範囲 10 に記載された発明は、新たに引用された文献5から新規性を有さない。文献5に記載された発明の触媒は、多孔質金属シートに担持されるものであるから、前記触媒は前記多孔質金属シートに「実質的に」被覆されているものと認められる。

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V 欄の続き

請求の範囲 7, 8, 11, 13, 15-17, 23, 25, 28

請求の範囲 7, 8, 11, 13, 15-17, 23, 25, 28 に記載された発明は、新たに引用された文献 5 と国際調査報告で引用された文献 1 乃至 3 により進歩性を有しない。文献 1 乃至 3 にそれぞれ記載された発明の多孔質金属シートとして、文献 5 に記載されたものを採用することは、当業者が容易になし得た事項である。

請求の範囲 12, 13, 26

請求の範囲 12, 13, 26 に記載された発明は、新たに引用された文献 5 と国際調査報告で引用された文献 1 乃至 4 により進歩性を有しない。繊維シートの空隙中に撥水性樹脂を含む疎水性物質を付着させることは、例えば文献 4 に教示されたように当該技術分野において周知の技術である。

請求の範囲 9, 14, 24, 27

請求の範囲 9, 14, 24, 27 に記載された発明は、新たに引用された文献 5 にも、国際調査報告に引用された何れの文献にも開示されておらず、かつ、当業者といえども自明のものではないので、新規性、進歩性を有する。

る。

本発明によれば、多孔質金属シートと、該多孔質金属シートに担持された触媒と、を有し、前記多孔質金属シートを構成する金属の粗面化された表面に触媒が担持されていることを特徴とする燃料電池用電極が提供される。

- 5 このとき、多孔質金属表面の粗面化は多孔質金属シートにエッチングを施す工程によりなされてもよい。こうすることにより、簡便に粗面化の程度を調節することができる。ここで、上記エッチングを施す工程はエッチング液に浸漬することにより化学的にエッチングを施す工程であってもよい。また、上記エッチングを施す工程は電解液に浸漬することにより電解エッチングを
10 施す工程であってもよい。

また、本発明によれば、多孔質金属シートを構成する金属の表面を粗面化する工程の後に、前記多孔質金属シートに触媒を担持させる工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法が提供される。

- 従来の燃料電池用電極では、触媒は炭素粒子を介して基材となる炭素材料
15 に接続していた。これに対し本発明では、触媒は多孔質金属シートを構成する金属の表面に直接担持されている。ここで、多孔質金属シートは均一な構成でなくてもよい。たとえば、金属繊維シートを構成する金属の組成が、表面と内部とで異なっているとしてもよく、導電性の表面層等を有しているとしてもよい。この場合も、触媒はシートを構成する部分に直接担持されている。

- 20 このように、本発明に係る燃料電池用電極は、多孔質金属シートを構成する金属の表面に直接触媒が担持された構成であるため、たとえば燃料極として用いた場合、触媒と電解質との界面における電気化学反応により生じた電子が確実に速やかに多孔質金属シートへと移動するようになる。また、酸化剤極として用いた場合、外部回路から多孔質金属シートに導かれた電子が、
25 接合された触媒に確実に速やかに導かれる。また、プロトン導電体が触媒に接して設けられているため、触媒表面で生成したプロトンの移動経路も確保されている。このように、本発明に係る燃料電池用電極は、電気化学反応

により生じる電子およびプロトンを効率よく利用することができるため、燃料電池の出力特性を向上させることができる。

本発明に係る燃料電池用電極で用いられている多孔質金属シートは、従来用いられている炭素材料に比べて導電率が高く、集電特性にすぐれるため、
5 電極の外側にエンドプレート等の集電部材を設けなくても、確実に集電を行うことができる。このため、燃料電池を小型軽量化、薄型化することができる。

また、本発明に係る燃料電池用電極によれば、多孔質金属シートを構成する金属の表面が粗面化されているため、触媒の担持が可能な表面積を増大させることができる。このため、炭素粒子等の表面積を確保する部材を用いる
10 ことなく、多孔質金属シートに充分量の触媒を直接担持させることができる。よって、電極特性を向上させることができる。

また、従来の電池を構成するカーボンペーパー等の炭素材料の表面は疎水

性であったため、表面の親水化が困難であった。これに対し、本発明に係る燃料電池用電極に用いられる多孔質金属シートの表面は、炭素材料に比べて親水性である。このため、たとえばメタノール等を含む液体燃料を燃料極に供給する場合、燃料極への液体燃料の浸透が従来の電極より促進される。このため、燃料の供給効率を向上させることができる。

また、電極内に生じた水の排出が促進される。たとえば、酸化剤極を構成する多孔質金属シートに所定の疎水性処理を施すことにより、電極内に親水性の領域と疎水性の領域を容易に設けることができる。こうすれば、酸化剤極に水の排出経路が確保され、フラッディングが抑制される。このため、すぐれた出力を安定的に発揮させることが可能となる。

このとき、必要に応じて多孔質金属シートの空隙中に疎水性物質を配置してもよい。こうすることにより、電極中の水分の排出が一層促進され、また、気体の通過経路が好適に確保される。よって、たとえば燃料電池用電極を酸化剤極に用いた場合、酸化剤極で生成する水を好適に電極外部に排出することが可能となる。

本発明の燃料電池用電極において、疎水性物質は撥水性樹脂を含むことができる。また、本発明の燃料電池用電極の製造方法において、多孔質金属シートの空隙中に撥水性樹脂を付着させる工程を含んでいてもよい。

本発明の燃料電池用電極において、前記多孔質金属シートが金属繊維シートである構成とすることができる。

本発明において、金属繊維シートとは、一本以上の金属繊維がシート状に成形されたものをいう。一種類の金属繊維から構成されていてもよいし、二
5 種類以上の金属繊維を含んでいてもよい。

本発明に係る燃料電池用電極においては、金属繊維シートを構成する単繊維一本一本の表面に触媒を担持させることができる。このため、触媒の担持量を充分多く確保することができる。また電極基材としての導電性や水素イオンの移動経路が好適に確保される。また、金属繊維シートは空隙率が比較
10 的大きいため、電極の軽量化も可能となる。なお、触媒はプロトン導電体により金属繊維に固着されていてもよい。また、金属繊維の表面にめっきされていてもよい。

本発明の燃料電池用電極において、触媒に接して設けられたプロトン導電体をさらに有していてもよい。また、本発明の燃料電池用電極の製造方法に
15 おいて、触媒の表面にプロトン導電体を付着させる工程を含んでいてもよい。こうすることにより、触媒、燃料、および電解質のいわゆる三相界面を確実にかつ十分に形成することができる。また、触媒表面で生成するプロトンの移動経路が好適に確保される。このため、燃料電池用の電極としてすぐれた電極特性を有し、燃料電池の出力特性を向上させることができる。

20 本発明の燃料電池用電極において、触媒が多孔質金属シートを構成する金

あれば適宜用いることができる。

本発明の燃料電池において、燃料電池用電極が燃料極を構成し、燃料が燃料電池用電極の表面に直接供給されてもよい。燃料が直接供給される具体的構成としては、たとえば、燃料極の多孔質金属シートに接して燃料容器や燃料供給部が設けられていたりする構成をいい、燃料極に、エンドプレート等の集電部材を介さずに燃料が供給されることをいう。なお、多孔質金属シートが板状である場合、表面に適宜貫通孔や、ストライプ状の導入路などを設けてもよい。こうすることにより、燃料を多孔質金属シート表面から電極全体により一層効率よく供給することができる。

10 また、本発明の燃料電池において、燃料電池用電極が酸化剤極を構成し、酸化剤が燃料電池用電極の表面に直接供給されてもよい。ここで、酸化剤が直接供給されるとは、酸化剤極の表面に、エンドプレート等を介さずに空気や酸素などの酸化剤が直接供給されることをいう。

15 なお、本発明の燃料電池を複数個直列または並列に組み合わせて組電池やスタック構造を形成してもよい。こうすることにより、組電池やスタック構造においても小型軽量化が実現し、また高い出力を安定的に発揮させることができる。

20 以上説明したように、本発明によれば、多孔質金属シートを構成する金属の粗面化された表面に触媒が担持された構成とすることにより、燃料電池を小型軽量化することができる。また、本発明によれば、燃料電池の出力特性を向上させることができる。また、本発明によれば、燃料電池の製造プロセスを簡素化することができる。

図面の簡単な説明

25 上述した目的、およびその他の目的、特徴および利点は、以下に述べる好適な実施の形態、およびそれに付随する以下の図面によってさらに明らかになる。

図1は、本実施形態における燃料電池の構造を模式的に示した断面図であ

請 求 の 範 囲

1. (削除)
2. 多孔質金属シートと、該多孔質金属シートに担持された触媒と、を有
- 5 し、前記多孔質金属シートを構成する金属の粗面化された表面に触媒が担持されていることを特徴とする燃料電池用電極。
3. (削除)
4. (削除)
5. (削除)
- 10 6. (補正後) 請求の範囲第2項に記載の燃料電池用電極において、前記多孔質金属シートが金属繊維シートであることを特徴とする燃料電池用電極。
7. (補正後) 請求の範囲第2項または第6項に記載の燃料電池用電極において、前記触媒に接して設けられたプロトン導電体をさらに有することを特徴とする燃料電池用電極。
- 15 8. (補正後) 請求の範囲第2項、第6項、および第7項のいずれかに記載の燃料電池用電極において、前記触媒が前記多孔質金属シートを構成する金属の表面に層状に形成され

ていることを特徴とする燃料電池用電極。

9. 請求の範囲第8項に記載の燃料電池用電極において、

前記多孔質金属シートを構成する金属の表面に前記触媒のめっき層が形成されていることを特徴とする燃料電池用電極。

5 10. (補正後) 請求の範囲第2項および第6項乃至第9項のいずれかに記載の燃料電池用電極において、前記触媒が実質的に前記多孔質金属シートを被覆していることを特徴とする燃料電池用電極。

11. (補正後) 請求の範囲第2項および第6項乃至第10項のいずれかに記載の燃料電池用電極において、前記触媒が、Pt、Ti、Cr、Fe、
10 Co、Ni、Cu、Zn、Nb、Mo、Ru、Pd、Ag、In、Sn、Sb、W、Au、Pb、Biのうちの少なくとも一種を含む金属、合金、またはそれらの酸化物であることを特徴とする燃料電池用電極。

12. (補正後) 請求の範囲第2項および第6項乃至第11項のいずれかに記載の燃料電池用電極において、前記多孔質金属シートの空隙中に疎水性
15 物質が配置されていることを特徴とする燃料電池用電極。

13. 請求の範囲第12項に記載の燃料電池用電極において、
前記疎水性物質は撥水性樹脂を含むことを特徴とする燃料電池用電極。

14. (補正後) 請求の範囲第2項および第6項乃至第13項のいずれかに記載の燃料電池用電極において、前記多孔質金属シートの少なくとも一方
20 の面に、プロトン導電性を有する平坦化層を有することを特徴とする燃料電池用電極。

15. (補正後) 燃料極、酸化剤極、および前記燃料極と前記酸化剤極とで挟持された固体電解質膜を含み、前記燃料極または前記酸化剤極が請求の
範囲第2項および第6項乃至第14項のいずれかに記載の燃料電池用電極で
25 あることを特徴とする燃料電池。

1 6. 請求の範囲第 1 5 項に記載の燃料電池において、

前記燃料電池用電極が燃料極を構成し、燃料が前記燃料電池用電極の表面に直接供給されることを特徴とする燃料電池。

1 7. 請求の範囲第 1 5 項または第 1 6 項に記載の燃料電池において、

5 前記燃料電池用電極が前記酸化剤極を構成し、酸化剤が前記燃料電池用電極の表面に直接供給されることを特徴とする燃料電池。

1 8. (削除)

1 9. (補正後) 多孔質金属シートを構成する金属の表面を粗面化する工程の後に、前記多孔質金属シートに触媒を担持させる工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

10

2 0. 請求の範囲第 1 9 項に記載の燃料電池用電極の製造方法において、

金属の表面を粗面化する前記工程は、前記多孔質金属シートにエッチングを施す工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

2 1. 請求の範囲第 2 0 項に記載の燃料電池用電極の製造方法において、

15 エッチングを施す前記工程は、前記多孔質金属シートをエッチング液に浸漬することにより化学的にエッチングを行う工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

2 2. 請求の範囲第 2 0 項に記載の燃料電池用電極の製造方法において、

20 エッチングを施す前記工程は、前記多孔質金属シートを電解液に浸漬し、電解エッチングを行う工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

2 3. (補正後) 請求の範囲第 1 9 項乃至第 2 2 項いずれかに記載の燃料電池用電極の製造方法において、触媒を担持させる前記工程は、P t、T i、C r、F e、C o、N i、C u、Z n、N b、M o、R u、P d、A g、I n、S n、S b、W、A u、P b、B i のうちの少なくとも一種を含む金属、合金、またはそれらの酸化物を担持させる工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

25

24. (補正後) 請求の範囲第19項乃至第23項いずれかに記載の燃料電池用電極の製造方法において、触媒を担持させる前記工程は、前記多孔質金属シートにめっきを施す工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

5 25. (補正後) 請求の範囲第19項乃至第24項いずれかに記載の燃料電池用電極の製造方法において、前記触媒の表面にプロトン導電体を付着させる工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

26. (補正後) 請求の範囲第19項乃至第25項いずれかに記載の燃料電池用電極の製造方法において、前記多孔質金属シートの空隙中に撥水性樹脂を付着させる工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

27. (補正後) 請求の範囲第19項乃至第26項に記載の燃料電池用電極の製造方法において、前記多孔質金属シートの少なくとも一方の面に平坦化層を形成する工程を含むことを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

28. (補正後) 請求の範囲第19項乃至第27項いずれかに記載の燃料電池用電極の製造方法によって燃料電池用電極を得る工程と、

15 固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを当接させた状態で、前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを圧着し、前記固体電解質膜と前記燃料電池用電極とを接合する工程と、

を含むことを特徴とする燃料電池の製造方法。